

ISOBUTYLENE POLYMER

Publication number: JP1038407 = JP64-38407
 Publication date: 1989-02-08
 Inventor: IWAHARA TAKANAO; NODA KOJI; ISAYAMA KATSUHIKO
 Applicant: KANEGAFUCHI CHEMICAL IND
 Classification:
 - International: C08F8/42; C08G81/02; C08F8/00; C08G81/00; (IPC1-7): C08F8/42
 - European:
 Application number: JP19870194838 19870804
 Priority number(s): JP19870194838 19870804

* Sho 64 and Hei 1 stand for the same year in JP.

Report a data error here

Abstract of JP1038407

PURPOSE: To obtain an isobutylene polymer which has a specified reactive silicon group at the molecular end and provides a cured product having excellent weather resistance, water resistance, heat resistance, electrical insulation property and gas barrier property.

CONSTITUTION: The title product is an isobutylene polymer having at least one reactive silicon group of formula 1 at the molecular end. In the formula 1, R<1> and R<2> are each a 1-20C alkyl group, a 6-20C aryl group, a 7-20C aralkyl group or a triorganosiloxy group of the formula (R<3>) 3SiO- (where R<3> is a 1-20C monovalent hydrocarbon group, and the three R<3> groups may be the same as or different from one another); the R<1> groups numbering a and R<2> groups numbering b, respectively, may be the same or different and R<1> and R<2> may be the same or different; X is a hydroxyl group or a hydrolyzable group, and if two or more X groups are bonded, they may be the same or different; a is 0, 1, 2 or 3; b is 0, 1 or 2; m is 0-18.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

⑩ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

昭64-38407

⑬ Int. Cl.⁴

C 08 F 3/42

識別記号

MHU

庁内整理番号

7167-4J

⑭ 公開 昭和64年(1989)2月8日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全8頁)

⑮ 発明の名称 イソブチレン系重合体

⑯ 特 願 昭62-194838

⑰ 出 願 昭62(1987)8月4日

⑱ 発 明 者 岩 原 孝 尚 大阪府枚方市牧野阪2丁目7-13
⑲ 発 明 者 野 田 浩 二 兵庫県神戸市垂水区小東山6-11-21
⑳ 発 明 者 諫 山 克 彦 兵庫県神戸市北区筑紫が丘4-8-7
㉑ 出 願 人 鐘淵化学工業株式会社 大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号
㉒ 代 理 人 弁理士 朝日奈 宗太 外1名

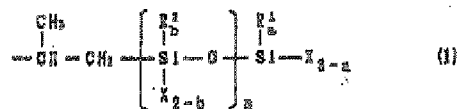
図号 組図 番号

1 発明の名称

イソブチレン系重合体

2 特許請求の範囲

1 分子末端に少なくとも1個の一般式(I)：



(式中、 R_1^a および R_2^a はいずれも炭素数1～20のアルキル基、炭素数6～20のアリール基、炭素数7～20のアラルキル基または
(R_2^a)₃SiO- (R_2^a は炭素数1～20の1個の炭化水素基であり、3個の R_2^a は同じであってもよく、異なってもよい) で示されるトリオルガノシロキシ基であり、 a 個の R_1^a および b 個の R_2^b はそれぞれ同じであってもよく、異なってもよく、 R_1^a と R_2^b とは同

じであってもよく、異なってもよい、 R は水酸基または加水分解性基であり、2個以上結合するときは同じであってもよく、異なってもよい、 a は0、1、2または3、 b は0、1または2、 n は0～15の整数) で表わされる反応性ケイ素基を有するイソブチレン系重合体。

2 一般式(I)中の R が水素原子、水酸基、アルコール基、アシルオキシ基、ケトキシマート基、アミノ基、アミド基、アミノオキシ基、メルカプト基またはアルケニルオキシ基であり、 R が2個以上のとき、それらは同じであってもよく、異なってもよい特許請求の範囲第1項記載のイソブチレン系重合体。

3 一般式(I)中の R がアルコール基である特許請求の範囲第1項記載のイソブチレン系重合体。

3 発明の詳細な説明

[産業上の利用分野]

本発明は分子中に特定の反応性ケイ素基を有するイソブチレン系重合体に関する。

【従来の技術】

反応性ケイ素基を有するゴム系重合体としては、分子末端に反応性ケイ素基を有するプロピレンオキシド系重合体が知られており、常温でも湿分などによって硬化し、ゴム弾性体になるという興味ある特性を有している。しかし、該プロピレンオキシド系重合体は、耐油性、耐水性、耐熱性などの特性が充分でなく、用途が限定されるばかりである。

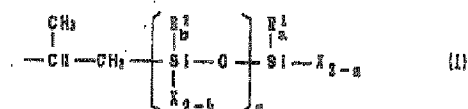
【発明が解決しようとする問題点】

本発明は、前記のごとき分子末端に反応性ケイ素基を有するプロピレンオキシド系重合体の耐油性、耐水性、耐熱性の不足などの欠点を改善するためになされたものである。

【問題点を解決するための手段】

本発明は、プロピレンオキシド系重合体のかわりに活性元素を含まないイソブチレン系重合体を用いて分子末端に反応性ケイ素基を有する

重合体を製造すると、前記のごとき分子末端に反応性ケイ素基を有するプロピレンオキシド系重合体の耐油性、耐水性、耐熱性の不足を改善できるばかりでなく、電気絶縁性、ガスバリアー性などの特性をも改善しうることが見出されたことに基づきなされたものであり、分子末端に少なくとも1個の一般式(1)：



(式中、 R^1 および R^2 はいずれも炭素数1～20のアルキル基、炭素数6～20のアリール基、炭素数7～20のアラルキル基または $(\text{R}^3)_3\text{SiO}-$ (R^3 は炭素数1～20の1価の炭化水素基であり、3個の R^3 は同じであってもよく、異なっているてもよい) で示されるトリオルガノシロキシ基であり、 a 個の R^1 および b 個の R^2 はそれぞれ同じであってもよく、異なっているてもよく、 R^1 と R^2 とは同じであってもよく、異な

っているてもよい、 X は水酸基または加水分解性基であり、2個以上結合するときは同じであってもよく、異なっているてもよい、 n は0、1、2または3、 b は0、1または2、 a は0～18の整数) で表わされる反応性ケイ素基を有するイソブチレン系重合体に関する。

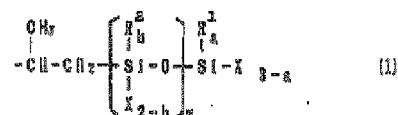
【実施例】

本発明の重合体は数平均分子量が800～30,000程度であるのが好ましく、さらに好ましくは1,000～15,000程度の液状物で、イソブチレン単位を主体とする重合体である。

イソブチレン単位を主体とするとは重合体の50% (重量%)、以下同様) 以上、好ましくは70%以上がイソブチレンに由来する単位であることを意味し、重合体を構成するその他の単位としては後述するイソブチレン系重合体を製造する際に使用される開始剤に由来する単位、イソブチレン系重合体を製造する際に使われるカチオン重合性モノマーに由来する単位などがあげられる。

本発明の重合体の数平均分子量が500未満になると、重合体にしめるイソブチレン単位の割合が主体にならなくなることもあり、イソブチレン系重合体であるがゆえに生ずる低ガス透過性、良好な耐油性や電気特性、さらには耐熱性などの特性が生じにくくなる。また、数平均分子量が30,000をこえると、重合体の特性としては何ら問題はないが、粘度が高くなりすぎたりして製造することが容易でなく実用的でないという問題があり、とくに1,000～15,000程度の液状物が取扱いやすいという点から好ましい。

本発明の重合体には、1分子当たり少なくとも1個、好ましくは1.2～4個の一般式(1)：



(式中、 R^1 および R^2 はいずれも炭素数1～20のアルキル基、炭素数6～20のアリール基、

炭素数7~20のアラルキル基または(R²)₂SiO-
(R²は炭素数1~20の1価の炭化水素基であり、3個のR²は同じであってもよく、異なってもよい)で示されるトリオルガノシロキシ基であり、a個のR¹およびb個のR²はそれぞれ同じであってもよく、異なってもよく、R¹とR²とは同じであってもよく、異なってもよい、Xは水酸基または加水分解性基であり、2個以上結合するときは同じであってもよく、異なってもよい、aは0、1、2または3、bは0、1または2、nは0~18の整数)で表わされる反応性ケイ素基が末端に存在する。

一般式(I)中のXのうち加水分解性基の具体例としては、たとえば水素原子、塩素原子などのハロゲン原子、アルコキシ基、アシルオキシ基、ケトキシメート基、アミノ基、アミド基、アミノオキシ基、メルカプト基、アルケニルオキシ基などの一般に使用されている基があげられる。これらのうちでは、加水分解性がマイルドで取

扱いやすいという点から、アルコキシ基がとくに好ましい。

一般式(I)中のXの数は1個以上であり、Xが1個未満のばあいには硬化性などの本発明の重合体が有する特性が充分えられなくなる。好ましいXの数は硬化物の物性の点から2個以上、とくには2~3個である。

前記反応性ケイ素基を形成するケイ素原子は1個でもよく、2個以上であってもよいが、シロキサン結合などにより遮断されたケイ素原子のばあいには、通常、18個のものまでであるのが好ましい。

一般式(I)で表わされる反応性ケイ素基の数が1分子当り1個未満のばあいには、硬化性が不充分になり、良好なゴム弾性挙動を現しにくくなる。反応性ケイ素基は分子末端に存在しており、このばあいには、形成される硬化物に含まれるイソブチレン系重合体成分の有効鎖目数が増えるため、高強度で高伸びのゴム状硬化物がえられやすくなる。とくに重合体分子が

直鎖状であり、この両末端に反応性ケイ素基を有している重合体が好ましい。

前記R¹、R²、R³の好ましい具体例としては、たとえばメチル基、エチル基などの低炭化水素基をあげることができる。

本発明の反応性ケイ素基を有するイソブチレン重合体は良好な耐熱性、耐水性、耐熱性を有し、さらにすぐれた電気絶縁性、ガスバリア性を有する。とくに、本発明の反応性ケイ素基を有するイソブチレン系重合体が芳香環でない不飽和結合を分子中に全く含有しないばあい、本発明の重合体はオキシプロピレン系重合体またはその他の不飽和結合を有する有機系重合体とくらべて、著しく耐熱性がよくなる。また、本発明の重合体は炭化水素系重合体であるので耐水性がよく、一旦表面が硬化してしまうと内面を未硬化のまま保つことができるので各種基材に対してすぐれた接着性能を有する、いわゆるマスタック型密封剤として利用できる。

つぎに本発明の重合体の製法について説明す

る。

本発明の分子中に特定の反応性ケイ素基を有するイソブチレン系重合体の骨格をなすイソブチレン系重合体は、イソブチレンモノマーを主成分とするカチオン重合法により製造される。

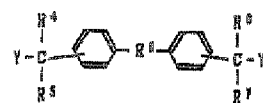
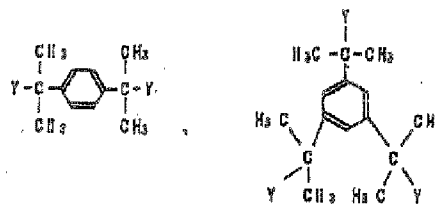
重合に際しては、主成分として、すなわち本発明のイソブチレン系重合体中に50%以上、好ましくは70%以上含まれるイソブチレンモノマー以外に、カチオン重合性の炭素数4~12のオレフィン、共役ジエン、ビニルエーテル、芳香族ビニル化合物、ビニルシラン類、アリルシラン類などが共重合せしめられる。このような共重合体成分の具体例としては、たとえば1-ブテン、2-ブテン、2-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ブテン、ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、ヘキセン、ビニルシクロヘキサン、ブタジエン、イソブレン、メチルビニルエーテル、エチルビニルエーテル、イソブチルビニルエーテル、スチレン、α-メチルスチレン、ジメチルスチレン、モノクロロスチレン、ジクロロスチ

レン、β-ピネン、インデン、ビニルトリクロロシラン、ビニルジメチルジクロロシラン、ビニルジメチルクロロシラン、ビニルジメチルメトキシシラン、ビニルトリメチルシラン、ジビニルジクロロシラン、ジビニルジメトキシシラン、ジビニルジメチルシラン、1,8-ジビニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン、トリビニルメチルシラン、テトラビニルシラン、アリルトリクロロシラン、アリルメチルジクロロシラン、アリルジメチルクロロシラン、アリルジメチルメトキシシラン、アリルトリメチルシラン、ジアリルジクロロシラン、ジアリルジメトキシシラン、ジアリルジメチルシラン、γ-メタクリロイルオキシプロピルトリメトキシシラン、γ-メタクリロイルオキシプロピルメチルジメトキシシランなどがあげられる。

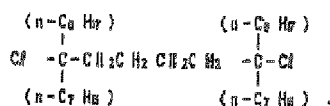
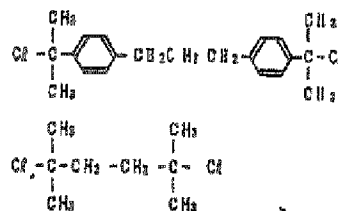
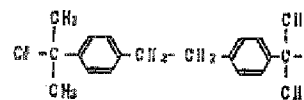
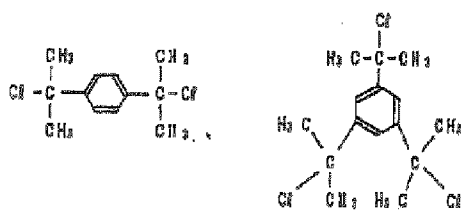
前記カオテン重合においては、 H_2SO_4 、 CCl_3CO_2H などの酸、 $SnCl_4$ 、 $TiCl_4$ などのフリーデルクラフツ触媒などを開始剤として用いてもよいが、分子末端の多くに官能基を有する

重合体を製造しようという点から、米国特許第4276894号明細書記載の下記イニファ-法により製造するのが好ましい。

イニファ-法とは、



(上記式中、Y はハロゲン原子、 $R^4 \sim R^7$ は水素原子、低級アルキル基またはフェニル基、 R^8 は2価の炭化水素基、 $R^9 \sim R^{12}$ は炭素数1~20の1価の炭化水素基、 R^{13} 、 R^{14} は水素原子、炭素数1~20の1価の炭化水素基またはハロゲン原子を置き、 R^{15} 、 R^{16} の両方がハロゲン原子であることはなく、また R^{15} と R^{16} との組合せがハロゲン原子と水素原子であることもない、 n は0または1~20の整数を置き)のような構造を有する化合物、具体的には

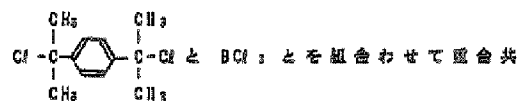


のような塩の安定な炭素陽イオンを生成する

ことのできる有機ハロゲン化合物と、 BCl_3 、 SnCl_4 、 TiCl_4 、 SbCl_5 、 FeCl_3 、 AlCl_3 などのフリーデルクラフツ酸触媒との組合わせを重合共開始剤として用いるカチオン重合法のことである。

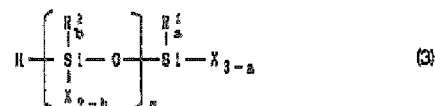
イニフアー法では $+10 \sim -150^\circ\text{C}$ の温度において、スタン、プロパン、ブタン、ペンタン、ヘキサンなどの飽和炭化水素系溶媒、塩化メチル、塩化メチレン、1,1-ジクロロエタンなどのようなハロゲン化炭化水素系溶媒あるいはそれらの混合物中で先に述べたカチオン重合性モノマーを重合することにより、該有機ハロゲン化合物中のハロゲン原子を分子末端に有する重合体を製造することができる。

イニフアー法の一例をあげると、

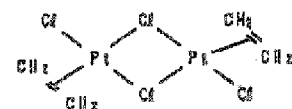


開始剤とし、塩化メチレン中、 -70°C でイソブチレンモノマーを重合することにより、分子両

(3) :



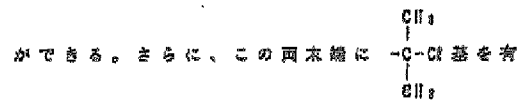
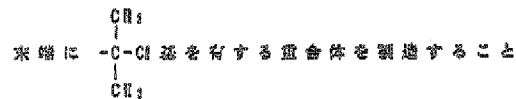
(式中、 R^1 、 R^2 、 X 、 a 、 b および n は前記に同じ)で表わされる水素化シリコン化合物とを、たとえば $\text{H}_2\text{PtCl}_6 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ 、



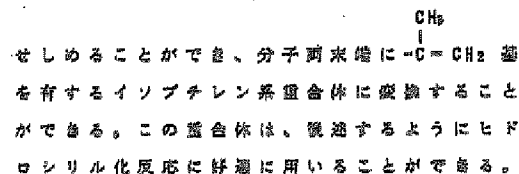
Pt メタル、 $\text{RhCl}(\text{PPh}_3)_3$ 、 RhCl_3 、 $\text{Rh}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 RuCl_3 、 IrCl_3 、 FeCl_3 、 AlCl_3 、

$\text{PdCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、 NiCl_2 、 TiCl_4 などのような化合物を触媒として、いわゆるヒドロシリル化反応により分子末端に導入する方法が有用である。

ヒドロシリル化反応は、一般に $0 \sim 150^\circ\text{C}$ の温度範囲で行なわれ、反応温度の調節、反応系の粘度の調節など必要に応じて、 n -ペンタン、



することができる。さらに、この両末端に



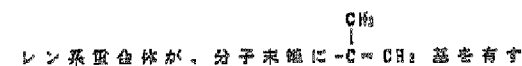
本発明に使用されるイソブチレン系重合体の分子中に反応性ケイ素基を導入する方法としては、上述のようにえられた一般式(2) :



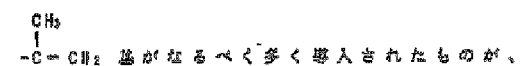
で表わされる不飽和結合の少なくとも1個を分子末端に有するイソブチレン系重合体と一般式

n -ヘキサン、 n -ヘプテン、ベンゼン、トルエン、キシレンなどの溶剤を用いてもよい。

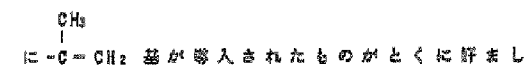
一般式(2)で表わされる不飽和結合を少なくとも1個分子中に有する重合体のうちでは、先に詳述したイニフアー法によりえられたイソブチ



るので好ましい。分子末端に



になるのでよく多く導入されたものが、ヒドロシリル化反応時に反応性ケイ素基が分子末端により多く導入され、酸化に関与しない末端が少なくなるので好ましく、末端の70%以上



に

数が1.4個より少ないと、不飽和2重結合のすべてに反応性ケイ素基を導入するのが困難であるので、分子末端に少なくとも1個の反応性ケイ素基を導入することができないばあいも生じ、反応性ケイ素基導入後の重合体の硬化性が不充分となることもある。また、反応性ケイ素基を1分子中に4.5をこえて導入された重合体の硬化物のばあいにはゴム的な性質が不足するばあいがあるので、該反応性ケイ素基を導入する前の不飽和2重結合の数は1分子中に4.5個までが好ましい。

一般式(3)で示される水素化シリコン化合物の具体例としては、たとえばトリメトキシシラン、トリエトキシシラン、メチルジメトキシシラン、フェニルジメトキシシラン、1,3,5,6,7,7-ヘプタメチル-1,1-ジメトキシテトラシロキサンなどのアルコキシシラン類；メチルジアセトキシシラン、トリメチルシロキシメチルアセトキシシランなどのアシロキシシラン類；ビス（ジメチルケトキシメート）メチルシラン、ビス

（シクロヘキシルケトキシメート）メチルシラン、ビス（ジエチルケトキシメート）トリメチルシロキシシランなどのケトキシメートシラン類；ジメチルシラン、トリメチルシロキシメチルシラン、1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン、1,3,5-トリメチルシクロトリシロキサンなどの分子中にSi-Si結合を2個以上有するハイドロシラン類；メチルジ（イソプロペニルオキシ）シランなどのアルケニルオキシシラン類などがあげられるが、これらに限定されるものではない。また、ハロゲン原子などのハロゲン原子であるトリクロロシラン、メチルジクロロシラン、ジメチルクロロシラン、トリメチルシロキシジクロロシランなどのクロロシラン類を使用するとヒドロシリル化反応が他の水素化シリコン化合物より容易に進行する。しかしながら、えられた重合体は縮合硬化するばあいには塩化水素ガスあるいは塩酸を生成したり、生成した塩素イオンが反応性ケイ素基の縮合反応の触媒となり、重合体の貯蔵安定性に悪影響を与えるばあいがある。

る。このようなばあい、えられた重合体のクロロシリル基の塩素原子などのハロゲン原子をアルコキシ基、アシルオキシ基、アミノオキシ基、アルケニルオキシ基、ヒドロキシ基などに交換して使用すると、えられたイソブチレン系重合体は前記のような悪影響がなく、ヒドロシリル化反応がおこりやすくなる。これらのうちではアルコキシ基が、加水分解性がマイルドで取り扱いやすいという点から、とくに好ましい。

本発明の重合体はシロキサン結合を形成することにより弾性、硬化し、ゴム状物が生成する。したがってこの重合体は接着剤や粘着剤、塗料、密封剤、防水剤、吹付剤、型取り用材料、成型ゴム材料などとして好適に使用される。

本発明の重合体の使用時には、各種添加物が必要に応じて添加される。このような添加物の例としては、たとえばシラノール縮合反応を促進する公知の硬化触媒、シラン化合物などの物性調整剤、各種フィラー、可塑剤、水、老化防止剤、紫外線吸収剤、滑剤、顔料、発泡剤、増

粘付与剤などがあげられる。つぎに本発明のイソブチレン系重合体を実施例にもとづき説明する。

実施例1

両末端に約92%の割合で、イソプロペニル基を有する分子量が約5,000のイソブチレン重合体（パラジウムクロライドと三塩化ホウ素とを開始剤としてイニフアー法により製造したものを脱塩化水素して製造）20gおよびトルエン1gを500mlの4つ口フラスコに秤取し、90℃で2時間減圧脱気した。つぎにテトラメチルアンモニアにて窒素で乾燥ヘプタン120ml、メチルジクロロシラン1.15gおよび塩化白金酸塩溶液0.1ml（ $H_2PtCl_6 \cdot 6H_2O$ 1gを1,2-ジメトキシエタン9g、エタノール1gに溶解させた溶液）を加えたのち、90℃で13時間反応させた。

反応溶液中の前記イソブチレン重合体の残存イソプロペニル基の量をIRスペクトル分析法により定量したところ、イソプロペニル基の吸収（1040 cm^{-1} ）はほとんど認められず、残存して

いなかった。

つぎにオルトギ酸メチル21.2g、メタノール6.4gを加え、70℃で3時間反応させた。この時点で反応系のpHは約7になり、中性となった。揮発成分を減圧留去したのち、残留成分にヘキサン50mlを加えてよくかき混ぜ、不溶分を濾過により除去した。濾液からヘキサンを留去し、

$$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ | \\ -\text{Si}(\text{OCH}_3)_2 \end{array}$$

末端に $-\text{Si}(\text{OCH}_3)_2$ 基を有するイソブチレン重合体をえた。

えられた重合体をNMR法により分析したところ、分子末端の約80%に $-\text{Si}(\text{OCH}_3)_2$ 基が導入されていることがわかった。

えられた重合体のNMRチャートを参考のために第1図に示す。

$$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ | \\ -\text{Si}(\text{OCH}_3)_2 \end{array}$$

えられた分子末端に $-\text{Si}(\text{OCH}_3)_2$ 基を有するイソブチレン重合体100部、可塑剤として水添部加ポリブテン（出光石油化学株式会社、商品名ポリ

定したところ、シート表面は全く劣化を受けておらず、シート自身にも樹脂化、軟化などが全くおこっていなかった。さらに同様にして作製した硬化物シートの耐熱性を測定するために、該硬化物シートを150℃の熱風乾燥機中におき、性状の経時変化を感測した。30分では全く変化がなく、さらに5時間経過しても若干着色はあったが、表面タックは全く増えておらず、樹脂化、軟化の現象も全くみられなかった。

比較例1

アリルエーテル基を全末端の97%に導入した平均分子量8000のポリプロピレンオキシド300gを攪拌器付耐圧反応容器に入れ、メチルジメトキシシラン15gを加えた。ついで塩化白金酸触媒溶液（ $\text{H}_2\text{PtCl}_6 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ の0.3gをイソプロピルアルコール15mlおよびチトラヒドロフラン150mlに溶解させた溶液）0.24mlを加えたのち、80℃で6時間反応させた。

反応溶液中の残存水素化ケイ素基の量をIRスペクトル分析法により定量したところ、ほとん

ブテンOH）50部、ヒンダードフェノール系酸化防止剤（大内新興化学株式会社、商品名ノクラックNS-5）1部、ジブチルスズジラウレート硬化触媒2部をはかりとってよく混合したのち、厚さ約3mmの型枠に流し込み、室温で4日間、さらに70℃で10日間養生して硬化物をえた。

該硬化物を切り取ってみると表面層約1mmは硬化していたが、内部は硬化していないマッシュ状の硬化物であった。

$$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ | \\ -\text{Si}(\text{OCH}_3)_2 \end{array}$$

また、えられた分子末端に $-\text{Si}(\text{OCH}_3)_2$ 基を有するイソブチレン重合体100部、水0.5部、トルエン50部をよくかき混ぜて均一なトルエン溶液にした。この溶液を厚さ約3mmの型枠に流し込み、室温で1日、さらに50℃で4日間養生したのち、トルエンを完全に揮発させるために50℃で2～3mmHgの減圧下で2時間脱揮した。

えられた硬化物シートをサンシャイン・カーボンアークウェザーメーター（120分サイクル、スプレー18分）に300時間暴露し、耐熱性を測

定し残存していなかった。またNMR法によりケイ素基の定量をしたところ、分子末端の約85%が

$$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ | \\ (\text{CH}_2\text{O})_n \text{Si}(\text{OCH}_3)_2 \text{H}_2\text{CH}_2\text{O} - \text{基} \end{array}$$

になっていることがわかった。

えられた重合体を用いて、実施例1と同様にして硬化物シートを作製し、耐熱性を測定したところ、硬化物シートは80時間暴露した時点ですでに軟化し、一部流れ落ちた。さらに同様にして作製した硬化物シートを用い、実施例1と同様にして耐熱性を測定したところ、30分で軟化、溶融が起こり、さらに5時間経過した時点では分解がさらに進み、揮発してしまった。

【発明の効果】

本発明のイソブチレン系重合体を用いると、耐熱性、耐水性、耐熱性、電気絶縁性、ガスバリアー性などにすぐれた硬化物がえられる。

4 型面の簡単な説明

第1図は実施例1でえられた本発明の重合体

のNMR分析結果を示すNMRスペクトラムである。

特許出願人 旭硝子化学工業株式会社
代理人弁護士 朝日奈 京太 ほか1名

例1 図

